



(19)

(11) Publication number: **06340784 A**

Generated Document.

**PATENT ABSTRACTS OF JAPAN**(21) Application number: **05129092**(51) Intl. Cl.: **C08L 23/26 C08K 7/02 C08L 51/06 C08L 51/06**(22) Application date: **31.05.93**

(30) Priority:

(43) Date of application publication: **13.12.94**

(84) Designated contracting states:

(71) Applicant: **mitsubishi petrochem co ltd**(72) Inventor: **SOBASHIMA YOSHIHIRO  
KINOSHITA AKIRA  
HAMAURA MASAhide**

(74) Representative:

**(54) HEAT-RESISTANT  
PROPYLENE RESIN  
MOLDING MATERIAL AND  
MOLDED ARTICLE**

(57) Abstract:

**PURPOSE:** To provide a heat-resistant propylene resin molding material and molded article having excellent heat-resistance and strength, small molding warpage, light weight and excellent moldability and remarkably suitable for industrial parts, especially automobile parts (instrument panel and various other heat-resistant parts).

**CONSTITUTION:** The heat-resistant propylene resin molding material is composed of (A) 3-97wt.% of a collected glass fiber structure consisting of (a1) 20-80 pts.wt. of reinforcing glass fibers essentially completely consisting of fibers having a diameter of  $\geq 20\mu\text{m}$  and a length of  $\geq 3\text{mm}$  and (a2) 80-20 pts.wt. of a crystalline propylene polymer at least partially modified with an unsaturated carboxylic acid or its derivative and having an MFR of  $\geq 50\text{g}/10\text{min}$  as the total polymer, wherein the above reinforcing glass fiber is aligned nearly parallel to each other in the component (a2) and (B) 97-3wt.% of a crystalline propylene polymer having an MFR of  $\geq 50\text{g}/10\text{min}$ .

COPYRIGHT: (C)1994,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平6-340784

(43) 公開日 平成6年(1994)12月13日

(51) Int.Cl. <sup>3</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 23/26	L D A			
C 0 8 K 7/02	K F T			
C 0 8 L 51/06	L L D			
	L L E			

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号	特願平5-129092	(71) 出願人	000006057 三菱油化株式会社 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号
(22) 出願日	平成5年(1993)5月31日	(72) 発明者	傍 島 好 洋 三重県四日市市東邦町1番地 三菱油化株式会社四日市総合研究所内
		(72) 発明者	木 下 暁 三重県四日市市東邦町1番地 三菱油化株式会社四日市総合研究所内
		(72) 発明者	浜 浦 正 英 三重県四日市市東邦町1番地 三菱油化株式会社四日市総合研究所内
		(74) 代理人	弁理士 佐藤 一雄 (外2名)

(54) 【発明の名称】 プロピレン系耐熱樹脂成形材料及びその成形体

(57) 【要約】

【目的】 耐熱性、強度に優れ、且つ成形反りも少なく、軽量で、成形性にも優れ、工業部品分野、特に自動車部品（インストルメントパネルや各種耐熱部品等）に大きな適性を備えたプロピレン系耐熱樹脂成形材料及びその成形体を提供する。

【構成】 下記に示す(A)成分及び(B)成分から構成されていることを特徴とするプロピレン系耐熱樹脂成形材料。

(A)成分

(a<sup>1</sup>)成分： 実質的に全てが少なくとも3mm以上の長さを有し、直径が20μm以下の強化用ガラス繊維20～80重量部と、

(a<sup>2</sup>)成分： 少なくとも一部が不飽和カルボン酸又はその誘導体で変性され、且つ重合体全体のMFRが5.0g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体80～20重量部とからなり、上記強化用ガラス繊維は(a<sup>1</sup>)成分中に互いにはほぼ平行な状態で配列して存在しているガラス繊維結束構造物 3～9.7重量%

(B)成分： MFRが5.0g/10分以上の結晶性プロピ

レン系重合体9.7～3重量%

【特許請求の範囲】

【請求項1】下記に示す(A)成分及び(B)成分から構成\*

\*されていることを特徴とするプロピレン系耐熱樹脂成形材料。

(A)成分

(a<sup>1</sup>)成分：実質的に全てが少なくとも3mm以上の長さを有し、直径が20μm以下の強化用ガラス繊維20～80重量部と、

(a<sup>2</sup>)成分：少なくとも一部が不飽和カルボン酸又はその誘導体で変性され、且つ重合体全体のMFRが50g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体80～20重量部

(但し、(a<sup>1</sup>)と(a<sup>2</sup>)の合計は100重量部)とからなり、上記強化用ガラス繊維は(a<sup>1</sup>)成分中に互いにはば平行な状態で配列して存在しているガラス繊維束構造物 3～97重量%

(B)成分：MFRが50g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体

97～3重量%

【請求項2】更に、アスペクト比が3以上の(a<sup>1</sup>)成分以外のフィラーを(A)成分と(B)成分の合計100重量部に対して50重量部以下の量で含有する請求項1に記載のプロピレン系耐熱樹脂成形材料。

【請求項3】(B)成分の結晶性プロピレン系重合体のMFRが200g/10分以上、フィラーのアスペクト比が15以上である請求項2に記載のプロピレン系耐熱樹脂成形材料。

【請求項4】更に、エチレン系エラストマー及びブチレン系エラストマーから選ばれた少なくとも一種のエラス\*

※トマーを(A)成分と(B)成分の合計100重量部に対して50重量部以下の量で含有する請求項1～3のいずれかの項に記載のプロピレン系耐熱樹脂成形材料。

【請求項5】MFRが20g/10分以上である請求項1～4のいずれかの項に記載のプロピレン系耐熱樹脂成形材料。

【請求項6】下記に示す(A)成分及び(B)成分から構成されるプロピレン系耐熱樹脂成形材料を常法で成形してなる密度が1.10g/cm<sup>3</sup>以下であることを特徴とする成形体。

(A)成分

(a<sup>1</sup>)成分：実質的に全てが少なくとも3mm以上の長さを有し、直径が20μm以下の強化用ガラス繊維20～80重量部と、

(a<sup>2</sup>)成分：少なくとも一部が不飽和カルボン酸又はその誘導体で変性され、且つ重合体全体のMFRが50g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体80～20重量部

(但し、(a<sup>1</sup>)と(a<sup>2</sup>)の合計は100重量部)とからなり、上記強化用ガラス繊維は(a<sup>2</sup>)成分中に互いにはば平行な状態で配列して存在しているガラス繊維束構造物 3～97重量%

(B)成分：MFRが50g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体

97～3重量%

【請求項7】更に、アスペクト比が3以上の(a<sup>1</sup>)成分以外のフィラーを(A)成分と(B)成分の合計100重量部に対して50重量部以下の量で含有する請求項6に記載の成形体。

【請求項8】(B)成分の結晶性プロピレン系重合体のMFRが200g/10分以上、フィラーのアスペクト比が15以上である請求項7に記載の成形体。

【請求項9】更に、エチレン系エラストマー及びブチレン系エラストマーから選ばれた少なくとも一種のエラストマーを(A)成分と(B)成分の合計100重量部に対して50重量部以下の量で含有する請求項6～8のいずれかの項に記載の成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、耐熱性、強度に優れ、且つ成形反りも少なく、軽量化成形体を得ることがで

き、その上、成形性にも優れたプロピレン系耐熱樹脂成形材料に関するもので、工業部品分野、特に自動車部品（インストルメントパネルや各種耐熱部品等）に大きな適性を備えているものである。

【0002】

【従来の技術】従来、プロピレン系樹脂成形体は、その優れた機械的強度、加工性、経済性等を備えていることにより、自動車を始め工業部品分野において広く用いられている。中でも高い剛性や耐熱性を必要とする分野においては、タルクやガラス繊維等の無機フィラーを複合化して高機能化し、例えば、自動車部品、具体的にはトリム、インストルメントパネル等の内装部品、バンパー等の外装部品、ファンシュラウド等の機能部品に広く実用化されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、このよ

うなガラス繊維を複合化したプロピレン系樹脂成形体においては、従来から以下に示すような問題点があった。すなわち、強化用ガラス繊維を分散させたプロピレン系樹脂成形体は、極めて高い水準の耐熱性を保持させることができるが、射出成形時等の冷却時の熱収縮等によって成形後に反り変形が生じ易く、この反り変形を抑えるため、プロピレン系樹脂成形材料の流動性を高めたり、タルクやマイカ等の平板状フィラーを含有させる方法等が採用されている。しかし、この場合においても成形反り抑制が未だ不十分であったり、多量のフィラーを充填する必要があることから、得られる組成物の密度が大きくなり、軽量化することができなかった。

## \* [0004]

【課題を解決するための手段】

【発明の概要】本発明者等は、上記課題を解決するために種々の研究を重ねた結果、特定のガラス繊維束構造物と、特定のプロピレン系樹脂からなる樹脂成形材料が、その成形品が軽量であるにも拘らず成形反りが極めて少なく、高度の耐熱性、且つ良好な成形性を備えていることを見い出して本発明を完成するに至った。すなわち、本発明のプロピレン系耐熱樹脂成形材料は、下記に示す(A)成分及び(B)成分から構成されていることを特徴とするものである。

## (A)成分

(a<sup>1</sup>)成分：実質的に全てが少なくとも3mm以上の長さを有し、直径が20μm以下の強化用ガラス繊維20～80重量部と、

(a<sup>2</sup>)成分：少なくとも一部が不飽和カルボン酸又はその誘導体で変性され、且つ重合体全体のMFRが50g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体80～20重量部

(但し、(a<sup>1</sup>)と(a<sup>2</sup>)の合計は100重量部)とからなり、上記強化用ガラス繊維は(a<sup>2</sup>)成分中に互いにはほぼ平行な状態で配列して存在しているガラス繊維束構造物

(B)成分：MFRが50g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体

97～3重量%

## 【0005】【発明の具体的説明】

## [1] プロピレン系耐熱樹脂成形材料

## (1) 構成成分

## (A) ガラス繊維束構造物 (A) 成分

本発明のプロピレン系耐熱樹脂成形材料を構成する(A)成分のガラス繊維束構造物は、実質的に全てが少なくとも3mm以上の長さを有し、直径が20μm以下の強化用ガラス繊維20～80重量部((a<sup>1</sup>)成分)と、少なくとも一部が不飽和カルボン酸又はその誘導体で変性され、且つ重合体全体のMFRが50g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体80～20重量部((a<sup>2</sup>)成分)とからなり、上記強化用ガラス繊維は互いにはほぼ平行な状態で配列して、通常数百本～数千本単位、好ましくは100～8,000本単位、特に好ましくは500～5,000本単位で束ねられた状態で(a<sup>2</sup>)成分中に存在しているものである。

【0006】(a) (a<sup>1</sup>)成分

上記ガラス繊維束構造物の構成成分である強化用ガラス繊維成分((a<sup>1</sup>)成分)は、実質的に全てが少なくとも3mm以上、好ましくは5～20mmの繊維長さを有し、その平均繊維径が20μm以下、好ましくは1～17μm、特に好ましくは3～14μmのものである。上記繊維長さが短かすぎるものでは耐熱性や成形反りが劣る。また、平均繊維径が大きすぎるものは耐熱性や成形反りが劣る。また、細すぎるものは機械的強度が劣る。

【0007】この強化用ガラス繊維の表面に集束剤や、樹脂との接着性・相溶性の改善を目的とした表面処理剤

の塗布を行なわなくても良いが、特にヤーグリッドキシプロビルトリメトキシシラン等のエポキシシラン、ビニルトリクロロシラン等のビニルシラン、ヤーアミノプロビルトリエトキシシラン等のアミノシラン等のシラン系カップリング剤で表面処理(塗布)したものは、耐熱性、強度、成形反り抑制等の点において好ましい結果が得られる。

【0008】ガラス繊維束構造物中のガラス繊維は、混練中のガラス繊維の折損を防止するために、公知の引き抜き法(英国特許出願公開第1,302,048号、米国特許第4,439,387号各明細書)等で製造される連続した強化用ガラス繊維を製造時にそのまま使用することが好ましい。すなわち、連続した強化用ガラス繊維(一般にロービングと称される。)を引きながら前述の(a<sup>2</sup>)成分の変性された結晶性プロピレン重合体を含浸させたものである。具体的には押出機を用い、クロスヘッドダイの中を連続した強化用ガラス繊維を通しながら、シリントー等から溶融せしめた(a<sup>2</sup>)成分の変性結晶性プロピレン重合体を供給して含浸し、その後で冷却したストランドをカッティングする方法等を挙げることができる。

【0009】(b) (a<sup>2</sup>)成分

上記ガラス繊維束構造物のもう一方の構成成分である変性結晶性プロピレン重合体((a<sup>2</sup>)成分)としては、その少なくとも一部が不飽和カルボン酸又はその誘導体により変性され、且つ重合体全体のMFRが50g/100分以上の結晶性プロピレン系重合体である。

## 結晶性プロピレン系重合体

変性に際して用いられる結晶性プロピレン系重合体としては、プロピレン単独重合体、過半重量のプロピレンと他の $\alpha$ -オレフィン（例えば、エチレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン、4-メチルペンテン、オクテン等）、ビニルエステル（例えば、酢酸ビニル）、芳香族ビニル単量体（例えば、スチレン）、ビニルシラン（例えば、ビニルトリメチルシラン、ビニルトリメチルシラン）等との二元以上のブロック、ランダム乃至グラフト共重合体（これらの混合物であっても良い。）等を用いることができる。

【0010】この結晶性プロピレン系重合体は重合条件でMFRを調整したもので、或いは、過酸化処理によって調整したのもで良い。該過酸化処理によって用いることのできる過酸化処理としては、例えば、メチルエチルケトンパーオキサイド、メチルイソブチルケトンパーオキサイド等のパーオキサイド、 $n$ -ブチル-4,4-ビス（ $t$ -ブチルパーオキシ）パレイト等のパーオキシケタール、クメンハイドロパーオキサイド、ジイソプロピルハイドロベンゼンパーオキサイド等のハイドロパーオキサイド、1,3-ビス（ $t$ -ブチルパーオキシイソプロピル）ベンゼン、ジクミルパーオキサイド等のジアルキルパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド、ビス（4- $t$ -ブチルシクロヘキシル）パーオキシジカーボネート等のパーカーボネート、 $t$ -ブチルパーオキシアセテート、 $t$ -ブチルパーオキシラウレート等のパーオキシエステル等が挙げられる。これら結晶性プロピレン系重合体の中でも、プロピレンの単独重合体部の密度が $0.9080/\text{cm}^3$ 以上のものを使用するのが耐熱性の点で好ましい。

## 【0011】変性

上記結晶性プロピレン系重合体を変性するための不飽和カルボン酸又はその誘導体としては、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、イタコン酸等の不飽和有機酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸等の不飽和有機酸の無水物、アクリル酸メチル、マレイン酸モノメチル等の不飽和有機酸のエステル、アクリル酸アミド、フマル酸モノアミド等の不飽和有機酸のアミド、イタコン酸イミド等の不飽和有機酸のイミド等を挙げることかできる。これら変性剤の中でも、アクリル酸、無水マレイン酸を用いて変性するのがガラス繊維の分散性やその補強効果の点で好ましく、特に無水マレイン酸を用いて変性するのが好ましい。変性方法としては、これら不飽和カルボン酸又はその誘導体よりなる変性剤を添加してグラフト共重合により変性する方法等を挙げることができる。これら不飽和カルボン酸又はその誘導体よりなる変性剤の使用量は、結晶性プロピレン系重合体100重量部に対して0.01~20重量部、好ましくは0.05~15重量部、特に好ましくは0.05~10重量部である。この場合、高濃度に変性した

ものを未変性の結晶性プロピレン重合体で希釈し、所望の変性量に調整しても良い。

## 【0012】変性結晶性プロピレン系重合体の物性

更に、変性後の結晶性プロピレン系重合体のMFR（JIS-K7210、230°C、2.16kg）は、50g/10分以上、好ましくは100g/10分以上、特に好ましくは200g/10分以上のものである。変性結晶性プロピレン系重合体のMFRが上記の範囲未満のものを使用すると該ベレット状物中の強化用ガラス繊維の分散が劣り、得られる組成物の物性が低下する。

## 【0013】(c)その他の成分（任意成分）

また、該(A)成分のガラス繊維結束構造物中には、本発明の効果を著しく損なわない範囲内で、他の各種樹脂、各種フィラー、各種エラストマー等を含有させることもできる。

## 【0014】(d)量比

上記ガラス繊維結束構造物中の(a')成分の強化用ガラス繊維と(a')成分の変性結晶性プロピレン系重合体との配合量比は、強化用ガラス繊維20~80重量部：変性結晶性プロピレン系重合体80~20重量部、好ましくは強化用ガラス繊維40~80重量部：変性結晶性プロピレン系重合体60~20重量部、特に好ましくは強化用ガラス繊維45~75重量部：変性結晶性プロピレン系重合体55~25重量部である。但し、(a')と(a'')の合計は100重量部である。ここで、(a')成分が少なすぎると、得られる成形体中のガラス繊維の分散が劣ったものとなり、一方、多すぎると所望の強度が得られない。ガラス繊維結束構造物は、上記(a')成分の説明の項で記載した方法で好適に製造され、長さは通常強化用ガラス繊維の長さ相当で、径は1~10mm程度であるものが成形時の取扱性から好ましい。

## 【0015】(B)結晶性プロピレン系重合体（(B)成分）

本発明のプロピレン系耐熱樹脂成形材料を構成する(B)成分のMFRが50g/10分以上の結晶性プロピレン系重合体としては、上記(a')成分と同様のものを用いることができ、プロピレン単独重合体、過半重量のプロピレンと他の $\alpha$ -オレフィン（例えば、エチレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン、4-メチルペンテン、オクテン等）、ビニルエステル（例えば、酢酸ビニル）、芳香族ビニル単量体（例えば、スチレン）、ビニルシラン（例えば、ビニルトリメチルシラン、ビニルトリメチルシラン）等との二元以上のブロック、ランダム乃至グラフト共重合体（これらの混合物であっても良い。）等を用いることができる。これら結晶性プロピレン系重合体の中でも、プロピレンの単独重合体（ポリプロピレン）、或いは、プロピレンとエチレンとの共重合体を使用することが好ましく、特にプロピレンの単独重合体部の密度が $0.9080/\text{cm}^3$ 以上のプロピレン

・エチレンブロック共重合体を使用することが好まし

(5)

い。このものの好ましいMFRは100g/10分以下、特に200g/10分以上が良い。MFRが低すぎると耐熱性、成形性や成形反り抑制が不十分となる。また、該結晶性プロピレン系重合体中には、本発明の効果を著しく損なわない範囲で、他の樹脂、各種フィラー、各種エラストマーを含有させることができる。特に、後記の任意成分を予め含有しておくことは成形性の品質（成形反り、機械的強度の向上）の点で好ましい。

#### 【0016】(2) 量 比

本発明のプロピレン系耐熱樹脂組成物においては、上記10 (A)成分のガラス繊維結束構造物成分と、(B)成分の結晶性プロピレン系重合体成分の配合量比が重要であり、その配合割合は、ガラス繊維結束構造物：結晶性プロピレン系重合体が3～97重量%：97～3重量%、好ましくは10～90重量%：90～10重量%、特に好ましくは20～80重量%：80～20重量%である。上記ガラス繊維結束構造物の配合割合が上記範囲未満であると耐熱性不足となり、また、上記範囲を超えると成形困難となる。

#### 【0017】(3) その他の配合成分（任意成分）

本発明のプロピレン系耐熱樹脂組成物は、上記(A)及び(B)の必須成分の他に、着色するために顔料を配合したり、更に性能の向上をはかるために、酸化防止剤、帯電防止剤、難燃剤、分散剤等を添加したり、特に以下に示す任意の成分(C)成分)として、アスペクト比が3以上のフィラー、或いは、エチレン系エラストマー及びスチレン系エラストマーから選ばれた少なくとも一種のエラストマーを配合することができる。これらは併用することもできる。この任意成分(C)は、(A)及び(B)成分と共に原状のまま成形機に供することもできるが、予め30 (B)成分中に配合して混練・造粒するのが好ましい。

#### 【0018】(a) アスペクト比が3以上のフィラー(C成分)

上記アスペクト比が3以上のフィラーとしては、無機や有機のフィラーがある。具体的には、タルク、マイカ、炭素繊維、ガラスフレーク、硫酸マグネシウム繊維、ほう酸アルミニウム繊維、チタン酸カリウム繊維、ウォラストナイト、炭酸カルシウム繊維、酸化チタン繊維、芳香族ポリアミド繊維等を挙げることができる。これらの中でもマイカやガラスフレークを用いることが好ましい。特に湿式粉碎や湿式分級したマイカを用いることが好ましい。これらフィラーはアスペクト比が10以上、特に15以上のものを用いることが好ましい。これらフィラーは界面活性剤、カップリング剤、金属石鹸等で表面処理したものでも良い。これらフィラーは、成形品の耐熱性や成形反り、外観や強度等をより一層向上させることができ、中でも表面処理したものが特に良い。

#### 【0019】(b) エラストマー成分(C成分)

上記エラストマー成分としては、エチレン系エラストマー及びスチレン系エラストマーから選ばれた少なくとも

一種のエラストマーを挙げることができる。このエラストマー成分を用いると衝撃強度や成形反り抑制が向上する。具体的には、

#### エチレン系エラストマー

エチレン系エラストマーとしては、エチレン・プロピレン二元共重合ゴム(EPDM)、エチレン・プロピレン・非共役ジエン三元共重合ゴム(EPDM)、エチレン・プロピレン・1二元共重合ゴム(EBM)、エチレン・プロピレン・ブテン-1三元共重合ゴム(EPBM)等が挙げられる。これらは混合物であっても良い。上記エチレン・プロピレン二元共重合ゴムは、プロピレン含量が20～55重量%、ムーニー粘度(MLV<sub>1+10</sub>, 100℃)が100未満、特に50未満のものを使用することが好ましい。上記エチレン・プロピレン・非共役ジエン三元共重合ゴムは、沃素価が20以下のものを使用することが好ましい。上記エチレン・プロピレン・ブテン-1三元共重合ゴムは、プロピレン及びブテンの含有量が、それぞれ全体の5～50重量%のものを使用することが好ましい。

#### 【0020】スチレン系エラストマー

スチレン系エラストマーとしては、例えば、水素添加スチレン・ブタジエンブロック共重合体及び水素添加スチレン・イソプレンブロック共重合体、すなわち、それぞれ完全に又は部分的に水素添加されたスチレン・ブタジエンブロック共重合体又はスチレン・イソプレンブロック共重合体の、いわゆるスチレン・エチレン/ブチレン・スチレンブロック共重合体、スチレン・エチレン/プロピレンブロック共重合体やスチレン・エチレン/プロピレン・スチレンブロック共重合体等であり、その水素添加率が95%以上、特に99%以上のものを使用することが好ましい。また、スチレン含量が5～50重量%、特に15～40重量%のものを使用することが好ましい。

#### 【0021】(c) 量 比

前記フィラー成分又はエラストマー成分の各配合量は、上記(A)成分と(B)成分の合計100重量部に対して50重量部以下、好ましくは3～50重量部、特に好ましくは5～30重量部の割合でそれぞれ配合され得る。このフィラー成分の配合量が上記範囲を超えると成形性が低下したり、密度が過大となり重量が増す。また、このエラストマー成分の配合量が上記範囲を超えると耐熱性が低下する。

#### 【0022】[II] プロピレン系耐熱樹脂成形材料

前記(A)及び(B)の必須成分の他に、必要により上記(C)成分を配合することによってプロピレン系耐熱樹脂成形材料が得られる。これら(B)成分又は(B)成分と(C)成分の配合物は、一軸押出機、二軸押出機、パンパリーミキサー、ロール、ブラベンダーブラストグラフ、ニーダー等通常の混練機を用いて混練造粒して得るのが

好ましいか、直接原状形状のまま(A)成分と共に成形機

機に供給し（ガラス繊維は後半部分より別フィード）、  
200℃の温度下で混練・造粒したペレットを得た。

【0031】(b) (B) 成分又は(C) 成分を含有した(B)  
成分

(B)-1: 重合MFRが210g/10分、密度が0.  
9082g/cm<sup>3</sup>のプロピレン単独重合体ペレット

【0032】(B)-2: 過酸化物「1, 3-ビス(1-  
ブチルパーオキシ-イソプロピル) ベンゼン」で調製し  
たMFR340g/10分、プロピレン単独重合体の密  
度が0. 9080g/cm<sup>3</sup>、エチレン含量3重量%の  
プロピレン・エチレンブロック共重合体78重量部 (B)成分)、  
湿式粉砕法で製造したアスペクト比18、  
平均粒径35μmのマイカ22重量部 (C)成分) の量  
比で二軸押出機に供給し（マイカは後半部分より別フィ  
ード）、200℃の温度で混練造粒して得たペレ  
ット。

【0033】(B)-3: 上記B-2にて用いたプロピ  
レン・エチレンブロック共重合体75重量部 (B)成  
分)、プロピレン含量3重量%、ムーニー粘度 (ML  
1+1, 100℃) 18のエチレン・プロピレン二元共重合  
ゴム25重量部 (C)成分) の量比で二軸押出機に供給  
し、200℃の温度で混練造粒して得たペレット。

【0034】(B)-4: 上記B-2にて用いたプロピ  
レン・エチレンブロック共重合体63重量部 (B)成  
分)、上記B-2にて用いたマイカ12重量部 (C)成  
分)、スチレン含量20重量%、数平均分子量30, 0  
00、MFR (230℃、2. 16kg) 150g/1

0分のスチレン・エチレン/ブチレン・スチレンブロ  
ック共重合体25重量部 (C)成分) の量比で二軸押出機  
に供給し（マイカは後半部分より別フィード）、20  
0℃の温度で混練造粒して得たペレット。

【0035】(B)-5: 重合MFRが30g/10  
分、密度が0. 9080g/cm<sup>3</sup>のプロピレン単独重  
合体ペレット (B)成分)

【0036】(B)-6: 重合MFRが40g/10  
分、プロピレン単独重合部の密度が0. 9076g/cm<sup>3</sup>、  
エチレン含量3重量%のプロピレン・エチレンブ  
ロック共重合体63重量部 (B)成分)、B-4にて用  
いたマイカ12重量部、B-4にて用いたスチレン・エ  
チレン/ブチレン・スチレンブロック共重合体25重量  
部 (C)成分) の量比で二軸押出機に供給し（マイカは  
後半部分より別フィード）、200℃の温度で混練造  
粒して得たペレット。

【0037】(3) 実験例

実施例1~4及び比較例1~3

上記の(A)-1~(A)-5成分及び(B)-1~(B)-6  
成分を表1に示す割合でドライブレンドし、それをスク  
リュージンライン式射出成形機へ供給して、成形反り評  
価用円盤シート及び物性評価用試験片を220℃の温度  
で成形した。この場合の成形サイクルは45秒であっ  
た。これらの評価結果を表1に示す。

【0038】

【表1】

9  
に供して成形しても良い。この場合、各成分の分散を良好化するために混練造粒法を選ぶことが好ましく、通常は二軸押出機を用いて混練造粒する。この際、上記(B)～(C)の各成分を同時混練しても良く、また性能の向上を図るべく各成分を分割、例えば、先ず(B)成分と(C)成分の一部または全部を混練し、その後に残りの成分を混練造粒することも出来る。混練は、一般に190～250℃、好ましくは200～240℃の温度下で行なわれる。また、前述したように、このような(B)成分～(C)成分の各成分の混練に際して、表面処理剤を混合し、(B)成分～(C)成分の混練と表面処理とを同時に行なうこともできる。この成形材料は成形性に優れるといった特徴を有する。

#### 【0023】[III] プロピレン系耐熱樹脂成形体

##### (1) 成形

プロピレン系耐熱樹脂成形体は、各種成形方法、すなわち、射出成形、圧縮成形、押出成形(シート成形、ブロー成形)等にて得られるが、これら成形方法の中でも効果発現の点で射出成形、射出圧縮成形(ブレイシングエクション)を行なうことが好ましい。

##### 【0024】(2) 用途

本発明のプロピレン系耐熱樹脂成形体は、耐熱性、強度に優れ、且つ成形反りも少なく、軽量であることから、各種の工業部品分野の、特に高機能化や大型化された各種成形品、例えば、バンパー、フェンダー、スポイラー、インストルメントパネル、トリム、ファンシュラウド、グローブボックス等の自動車内外装部品、テレビケース、VTRケース、洗濯機カバー、掃除機ケース等の家電機器製品の部品、ステレオケース等の音響製品部品向けの各種部品として、実用に充分な性能を有している。

##### 【0025】

【実施例】以下に実験例を示して本発明を更に具体的に説明する。ここで行なった評価方法は次に示すとおりである。

##### (1) 評価方法

###### 耐熱性

成形体試験片にて曲げ弾性率をJIS-K7203に準拠して測定した。測定温度は100℃である。

###### 成形反り

円盤シート(200φ×2.0mm)を射出成形(ピンゲート)し、成形品の変形量(定盤上にセットした円盤シートの片端を押さえ、反対側の反り(跳ね上がり)量を隙間ゲージとノギスにて測定した。

###### 密度

射出成形したシート(120×120×3mm)にてJIS-K7112に準拠して測定した。

###### 成形品MFR

上記シートを粉砕し、そのMFRをJIS-K7210(230℃、2.16kg)に準拠して測定した。本値

が大きいほど成形性が良好であると判断される。

##### 【0026】(2) 原材料

###### (a) (A)成分

(A)-1: 無水マレイン酸(0.08重量%)で変性したMFR230g/10分、密度0.9083g/cm<sup>3</sup>のプロピレン単独重合体と、γ-アミノプロピルトリエトキシシランで表面処理した平均直径10μmの連続したガラス繊維を、各50重量部ずつを押出機に供給し、200℃の温度に加熱されたクロスヘッド部にて該ガラス繊維を引っ張りながら変性プロピレン単独重合体を含浸させたストランドを冷却し、長さ12mmにカットしてベレット状のガラス繊維結束構造物を得た。

【0027】(A)-2: 無水マレイン酸(0.09重量%)で変性したMFR250g/10分、密度0.9081g/cm<sup>3</sup>のエチレン含量3重量%のプロピレン・エチレンブロック共重合体と、γ-グリシドキシプロピルトリエトキシシランで表面処理した平均直径10μmの連続したガラス繊維を、各々30重量部、70重量部の量比で押出機に供給し、200℃の温度に加熱されたクロスヘッド部にて該ガラス繊維を引っ張りながら変性プロピレン・エチレンブロック共重合体を含浸させたストランドを冷却し、長さ12mmにカットしてベレット状のガラス繊維結束構造物を得た。

【0028】(A)-3: 無水マレイン酸(0.09重量%)で変性したMFR30g/10分、密度0.9082g/cm<sup>3</sup>のプロピレン単独重合体と、γ-アミノプロピルトリエトキシシランで表面処理した平均直径17μmの連続したガラス繊維を、各50重量部ずつ押出機に供給し、200℃の温度に加熱されたクロスヘッド部にて該ガラス繊維を引っ張りながら変性プロピレン単独重合体を含浸させたストランドを冷却し、長さ12mmにカットしてベレット状のガラス繊維結束構造物を得た。

【0029】(A)-4: アクリル酸(0.7重量%)で変性したMFR40g/10分、プロピレン単独重合部の密度が0.9079g/cm<sup>3</sup>、エチレン含量3重量%のプロピレン・エチレンブロック共重合体と、γ-グリシドキシプロピルトリエトキシシランで表面処理した平均直径17μmの連続したガラス繊維を、各々30重量部、70重量部の量比で押出機に供給し、200℃の温度に加熱されたクロスヘッド部にて該ガラス繊維を引っ張りながら変性プロピレン・エチレンブロック共重合体を含浸させたストランドを冷却し、長さ12mmにカットしてベレット状のガラス繊維結束構造物を得た。

【0030】(A)-5: 無水マレイン酸(0.08重量%)で変性したMFR230g/10分、密度0.9083g/cm<sup>3</sup>のプロピレン単独重合体と、γ-アミノプロピルトリエトキシシランで表面処理した平均直径10μm、長さ6mmのチョップドストランド状ガラス繊維を、各々80重量部、20重量部の量比で二軸押出



表 1

	組 成				評 価			
	(A) 成 分		(B) 成分又は (C) 成分含有の (B) 成分		耐 熱 性 (at 100℃ 曲げ弾性率) (kg/cm <sup>2</sup> )	成形反り (mm)	密 度 (g/cm <sup>3</sup> )	成形品 MFR (g/10分)
	種 類	重量%	種 類	重量%				
実施例1	(A)-1	40	(B)-1	60	28,400	2.2	1.03	23
実施例2	(A)-1	20	(B)-2	80	24,700	0.5	1.10	31
実施例3	(A)-2	30	(B)-3	70	21,900	1.0	1.04	38
実施例4	(A)-2	20	(B)-4	80	21,000	0.8	1.06	45
比較例1	(A)-3	40	(B)-5	60	20,300	9.3	1.03	5
比較例2	(A)-4	20	(B)-6	80	18,300	5.8	1.06	8
比較例3	(A)-5	100	-	-	24,900	12.5	1.03	16

【0039】表1の結果から、実施例1～4に示す樹脂組成物を用いて射出成形した試験片、成形品はいずれも優れた耐熱性、成形性を示し、成形反りも極めて少なく軽量で例えば自動車用部品としての特性が大であった。一方、比較例1～3に示す樹脂組成物を用いて射出成形した試験片、成形品はいずれも耐熱性や成形反りが不十分なものであったり過大なものであった。

30

【0040】

【発明の効果】本発明のプロピレン系樹脂組成物による成形品は、耐熱性、成形性、成形反りが優れ、軽量であるために、例えば、軽量で高度な耐熱性、成形寸法安定性を求められる自動車部品への適用が期待できることから、工業的に極めて重要な素材である。